

特開平4-253974

(43) 公開日 平成4年(1992)9月9日

(51) Int. Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 D 401/12		8829-4C		
A 0 1 N 47/36		8930-4H		
C 0 7 D 213/75		6701-4C		
401/14		8829-4C		
405/14		8829-4C		

審査請求 未請求 請求項の数4(全31頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平3-100628	(71) 出願人	000000354 石原産業株式会社 大阪府大阪市西区江戸堀1丁目3番22号
(22) 出願日	平成3年(1991)2月6日	(72) 発明者	坂下 信行 滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原 産業株式会社中央研究所内
		(72) 発明者	中島 俊雄 滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原 産業株式会社中央研究所内
		(72) 発明者	村井 重夫 滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原 産業株式会社中央研究所内
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 スルホニル尿素系化合物、それらの製造方法及びそれらを含有する除草剤

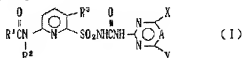
(57) 【要約】

それらの製造方法及びそれらを含有する除草剤。

【目的】 低用量で広い殺草スペクトラムを示す除草剤の有効成分として有用な化合物を提供する。

【構成】 一般式 (1)

【化14】

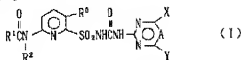


(式中、R¹ はシクロアルキル基、アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいビリジル基、置換されてもよいチエニル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基又は置換されてもよいピラジニル基であり、R² はアルキル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基又はベンジル基であり、R³ は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基又はハロアルキル基であり、X及びYは各々独立してハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基又はハロアルコキシ基であり、Aは=C H-又は=N-である) で表わされるスルホニル尿素系化合物又はそれらの塩、

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式(1)

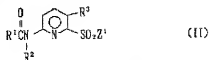
【化1】



(式中、R¹ はシクロアルキル基、アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいピリジル基、置換されてもよいチエニル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基又は置換されてもよいピラジニル基であり、R² はアルキル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基又はベンジル基であり、R³ は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基又はハロアルキル基であり、X及びYは各々独立してハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基又はハロアルコキシ基であり、Aは=C—H—又は=N—である)で表わされるスルホニル尿素系化合物又はそれらの塩。

【請求項2】 一般式(1I)

【化2】



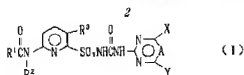
(式中、R¹ はシクロアルキル基、アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいピリジル基、置換されてもよいチエニル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基又は置換されてもよいピラジニル基であり、R² はアルキル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基又はベンジル基であり、R³ は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基又はハロアルキル基であり、Z¹ は—NH₂基、—NCO基又は—NHCO₂基であり、R⁴ はアルキル基又はアルキル基である)で表わされる置換ピリジン系化合物と、一般式(1II)

【化3】



(式中、X及びYは各々独立してハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基又はハロアルコキシ基であり、Aは=C—H—又は=N—であり、Z² はZ¹が—NCO基又は—NHCO₂基の場合—NH₂基であり、Z¹が—NH₂基の場合—NCO基又は—NHCO₂基であり、R⁴は前述の通りである)で表わされるピリジン系化合物とを反応させることを特徴とする、一般式(1)

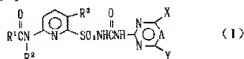
【化1】



(式中、R¹、R²、R³、X、Y及びAは前述の通りである)で表わされるスルホニル尿素系化合物又はそれらの塩の製造方法。

【請求項3】 一般式(1)

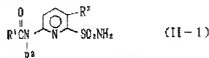
【化1】



(式中、R¹ はシクロアルキル基、アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいピリジル基、置換されてもよいチエニル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基又は置換されてもよいピラジニル基であり、R² はアルキル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基又はベンジル基であり、R³ は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基又はハロアルキル基であり、X及びYは各々独立してハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基又はハロアルコキシ基であり、Aは=C—H—又は=N—である)で表わされるスルホニル尿素系化合物又はそれらの塩を有効成分とすることを特徴とする除草剤。

【請求項4】 一般式(1I—1)

【化4】



(式中、R¹ はシクロアルキル基、アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいピリジル基、置換されてもよいチエニル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基又は置換されてもよいピラジニル基であり、R² はアルキル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基又はベンジル基であり、R³ は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基又はハロアルキル基である)で表わされる置換ピリジン系化合物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、新規なスルホニル尿素系化合物又はそれらの塩、それらの製造方法及びそれらを含有する除草剤に関する。

【0002】

【従来技術】 米国特許第4,946,494号公報には除草剤の有効成分として有用なピリジンスルホニル尿素誘導体が記載されているが、本発明化合物とはスルホニル尿素基が直接結合しているピリジン環の6位の置換基

3

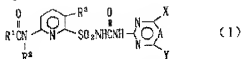
において構造が異なる。

【0003】

【発明の構成】本発明は、後記一般式(1)で表わされるスルホニル尿素系化合物又はそれらの塩、それらの製造方法及びそれらを含有する除草剤、さらには該化合物を製造するための中間体に関する。

一般式(1)

【化1】



(式中、 R^1 はシクロアルキル基、アルコキシアルキル基、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいビリジル基、置換されてもよいチエンル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基又は置換されてもよいピラジニル基であり、 R^2 はアルキル基、ハロアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基又はペンジル基であり、 R^3 は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基又はハロアルキル基であり、X及びYは各々独立してハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基又はハロアルコキシ基であり、Aは CH= 又は N= である)

【0004】一般式(1)中、 R^1 に含まれる置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいビリジル基、置換されてもよいチエンル基、置換されてもよいフリル基、置換されてもよいピラゾリル基及び置換されてもよいピラジニル基の置換基としては、例えばハロゲン原子、アルキル基、ハロアルキル基、アルコキシ基、 $-\text{NO}_2$ 基、 $-\text{CN}$ 基、 $-\text{CO}_2\text{R}^4$ 基、 $-\text{SO}_2\text{CH}_3$ 基などが挙げられ、 R^5 は水素原子又はアルキル基である。また、それら置換基の置換数は1又は2以上であってもよく、置換数が2以上の場合、置換基の種類は同じでも異なっている。

【0005】一般式(1)中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、X及びYに含まれるアルキル基並びにアルキル部分としては炭素数1~6のもの、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられ、それらは直鎖又は枝分れ脂肪鎖の構造異性のものも含み、 R^1 及び R^2 に含まれるシクロアルキル基としては、炭素数3~6のもの、例えばシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などが挙げられる。また、 R^1 、 R^2 、 R^3 、X及びYに含まれるハロゲン原子としては、弗素、塩素、臭素又は碘素の各原子が挙げられる。

【0006】一般式(1)で表わされるスルホニル尿素系化合物の塩としては、ナトリウム、カリウムなどのアルカリ金属塩、マグネシウム、カルシウムなどのアルカリ土類金属塩、モノメチルアミン、ジメチルアミン、トリメチルアミンなどのアミン塩が挙げられる。

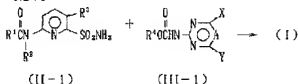
【0007】一般式(1)で表わされるスルホニル尿素

4

系化合物は、例えば次の【A】~【D】のような方法によって製造することができる。

【0008】【A】

【化5】

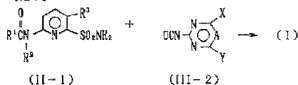


【II-1】

【III-1】

【B】

【化6】

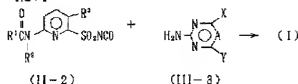


【II-1】

【III-2】

【C】

【化7】

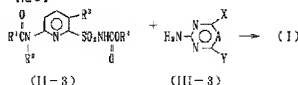


【II-2】

【III-3】

【D】

【化8】



【II-3】

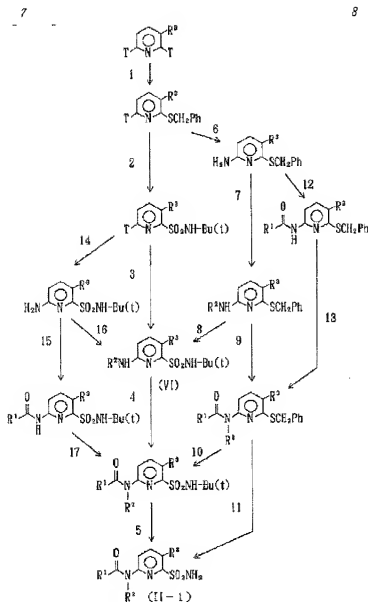
【III-3】

【0009】【A】~【D】の反応中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、X、Y及びAは前述の通りであり、 R^4 はアルキル基又はアリール(aryl)基である。

【0010】 R^4 で表わされるアルキル基としては、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^5 、X及びYについて前記したものと同様なアルキル基が挙げられ、アリール基としてはフェニル基、塩素原子で置換されたフェニル基、メチル基で置換されたフェニル基、ナフチル基などが挙げられる。

【0011】反応【A】は塩基の存在下で行なわれ、反応【B】、【C】及び【D】も必要に応じて塩基の存在下でおこなわれる。塩基としてはトリエチルアミンのような三級アミン、1, 8-ジアザビシクロ【5. 4. 0】-7-ウンデセンなどが使用される。

【0012】また反応【A】、【B】、【C】及び【D】は適量溶媒の存在下でおこなわれる。溶媒として



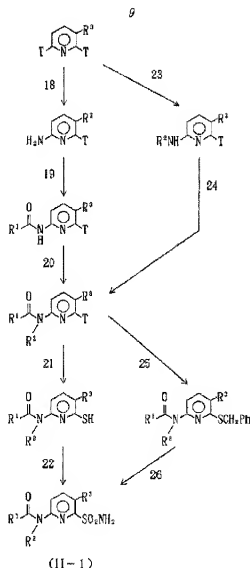
【0021】反応[F]中、1～17の各反応工程は次のような反応条件である。

1. $PhCH_2SH$ 、塩基、溶媒、 $80 \sim 170^\circ C$
2. (1) 50% aq. 酢酸、 Cl_2 、 $-10 \sim +10^\circ C$
- (11) $Bu(t)-NH_2$ 、溶媒、 $0^\circ C \sim$ 室温
3. $R^2 NH_2$ 、必要に応じて $CuCl$ 及び/又は溶媒、 $100 \sim 200^\circ C$
4. $R^1 COCl$ 、溶媒、塩基、 $-10 \sim +100^\circ C$
5. CF_3CO_2H 、室温～還流温度
6. NH_3 、必要に応じて $CuCl$ 及び/又は溶媒、 $0 \sim 200^\circ C$
7. $R^2 T'$ 、塩基、溶媒、 $-10 \sim +100^\circ C$
8. (1) 50% aq. 酢酸、 Cl_2 、 $-10 \sim +10^\circ C$
- (11) $Bu(t)-NH_2$ 、溶媒、 $0^\circ C \sim$ 室温
9. $R^1 COCl$ 、溶媒、塩基、 $-10 \sim +100^\circ C$

10. (1) 50% aq. 酢酸、 Cl_2 、 $-10 \sim +10^\circ C$
- (11) $Bu(t)-NH_2$ 、溶媒、 $0^\circ C \sim$ 室温
11. (1) 50% aq. 酢酸、 Cl_2 、 $-10 \sim +10^\circ C$
- (11) NH_3 、溶媒、 $0^\circ C \sim$ 室温
12. $R^1 COCl$ 、溶媒、塩基、 $-10 \sim +100^\circ C$
13. $R^2 T'$ 、溶媒、塩基、 $-10 \sim +100^\circ C$
14. NH_3 、溶媒、必要に応じて $CuCl$ 、 $100 \sim 200^\circ C$
15. $R^1 COCl$ 、溶媒、塩基、 $-10^\circ C \sim$ 室温
16. $R^2 T'$ 、溶媒、塩基、 $-10 \sim +100^\circ C$
17. $R^2 T'$ 、溶媒、塩基、 $-10 \sim +100^\circ C$

【0022】[G]

[化11]



【0023】反応[G]中、18～26の各反応工程は次のような反応条件である。

18. NH_3 、溶媒、必要に応じて CuCl 、100～200℃

19. $\text{R}^1 \text{COCl}$ 、塩基、溶媒、-10～+100℃

20. $\text{R}^3 \text{T}'$ 、塩基、溶媒、-10～+100℃

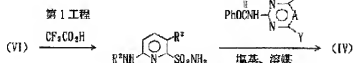
21. NaSH 、溶媒、50～200℃

又は (1) $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ 、酢酸、必要に応じて溶媒、50℃～還流温度

(1) 塩基、必要に応じて溶媒、0～100℃

40

*



【0029】(式中、 R^1 、 R^2 、 X 、 Y 、 A 及び Ph は前述の通りである)

【0030】反応[J]第1工程の反応温度は通常室温

50

*

10

* 22. (1) 50% aq. 酢酸、 Cl_2 、-10～+10℃

(1) NH_3 、溶媒、0℃～室温

23. $\text{R}^2 \text{NH}_2$ 、溶媒、必要に応じて CuCl 、100～200℃

24. $\text{R}^1 \text{COCl}$ 、塩基、溶媒、-10～+100℃

25. $\text{PhCH}_2 \text{SH}$ 、塩基、溶媒、80～170℃

26. (1) 50% aq. 酢酸、 Cl_2 、-10～+10℃

10 (1) NH_3 、溶媒、0℃～室温

【0024】反応[F]及び[G]中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は前述の通りであり、 T 及び T' は各々独立して塩素、臭素等のハロゲン原子である。また、 Ph はフェニル基を、 Bu (t)はターシャリーブチル基を、aq.は水溶液を各々示す。

【0025】また反応[C]中の(1I-2)で表わされる化合物は、例えば次の[H]のような方法で、さらに反応[D]中の(1I-3)で表わされる化合物は、例えば次の[I]のような方法で製造することができる。

20

[H]

(1) $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_3\text{NCO}$

K_2CO_3 、 CH_3COCH_3

(1I-1) $\xrightarrow{\hspace{1cm}}$ (1I-2)

(2) COCl_2 、キシレン

【0026】

[I]

ClCO_2R^4

$\text{N} = \text{H}$ 、テトラヒドロフラン

30

(1I-1) $\xrightarrow{\hspace{1cm}}$ (1I-3)

反応式[H]又は[I]中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りである。

【0027】前記反応式[E]中の(1V)で表わされる化合物は、前記反応[F]中の(1V)で表わされる化合物を用いて、例えば次の[J]のような方法で製造することができる。

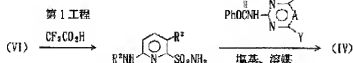
【0028】[J]

[化12]

40

*

第2工程



【0029】(式中、 R^1 、 R^2 、 X 、 Y 、 A 及び Ph は前述の通りである)

【0030】反応[J]第1工程の反応温度は通常室温

50

*

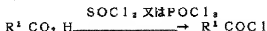
～還流温度、反応時間は0.1～24時間、望ましくは0.5～5時間であり、第2工程の反応温度は通常0℃～還流温度であり、望ましくは10℃～室温であり、反

11

応時間は0.05～2.4時間、望ましくは0.1～1時間である。

【0031】また、反応(E)～(G)中の R^1 COC I で表わされる化合物は、例えば次の【K】のような方法で製造することができる。

【K】



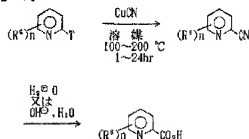
溶媒

必要に応じて触媒、50℃～還流温度
(式中、 R^1 は前述の通りである)

【0032】反応(K)中の R^1 CO₂ Hで表わされる化合物は通常の方法により容易に得られるが、置換されてもよいピコリン酸の場合は、例えば次の【L】のような方法で製造してもよい。

【0033】【L】

【化13】



【0034】【式中、Tは前述の通りであり、 R^2 はハロゲン原子、アルキル基、ハロアルキル基、アルコキシ基、 $-NO_2$ 基であり、 n は0～4の整数(n が2～4の整数のとき R^2 は同一又は異なってもよい)である]

【0035】【F】～【L】の各反応の反応温度、反応*30

- (1) 化合物No. 58
- (2) デモールB Pパウダー
(商品名：花王(株)製)
- (3) NaCl
- (4) デキストリン
- (5) TP-89121
(商品名：竹本油脂(株)製)

以上の各成分を高圧混合細粒機に入れ、さらにそこへ20%の水を加え造粒・乾燥して顆粒の水和剤が得られ※

- (1) カオリン
- (2) ラベリンS
(商品名：第一工業製薬(株)製)
- (3) ソルボール5039
(商品名：東邦化学工業(株)製)
- (4) カープレックス
(商品名：塩野義製薬(株)製) 以上の(1)～(4)

※。

【0040】製剤例2

75	重量部
13	5重量部
10	重量部
0.5	重量部
1	重量部
15	重量部

50 成分の混合物と化合物No. 48とを9：1の重量比

12

*時間、溶媒(必要に応じて使用される溶媒)、塩基物質、必要に応じて使用される触媒などの反応条件は、特に記載のない場合には通常類似の反応における反応条件から適宜選択できる。

【0036】また、一般式(1)で表わされる前記スルホニル尿素系化合物の塩は、通常の製造方法によって容易に得られる。

【0037】一般式(1)で表わされるスルホニル尿素系化合物は、後記試験例にみる通り、低濃度で広い殺草スペクトラムを示し、同時に小麦、ダイズ又はテンサイに対して安全性を示すものを含む。従って、一般式(1)で表わされる化合物又はその塩は除草剤の有効成分として有用である。

【0038】一般式(1)で表わされる化合物又はその塩を有効成分として含有する本発明除草剤を施用する場合、通常は組体、必要に応じて希釈剤、溶剤、乳化剤、展着剤、界面活性剤などの各種補助剤と混合して、粒剤、顆粒水和剤、水和剤、乳剤、液剤、懸濁剤などに製剤して使用する。有効成分化合物と農薬用補助剤との適当な配合重量比は、一般に1：99～90：10、望ましくは5：95～80：20である。有効成分化合物の使用量は気象条件、土壌条件、薬剤の製剤形態、対象雑草の種類、施用時間などの相違により一概に規定できないが、一般に1アール当りの施用有効成分量としては0.005g～50g、望ましくは0.01g～10g、更に望ましくは0.05g～5gである。

【0039】以下に本発明除草剤の製剤例を記載する。

製剤例1

13

14

合で混合して水和剤が得られる。

- (1) 珪藻土
(2) ディクスゾールW-66
(商品名: 第一工業製薬(株)製)
(3) ディクスゾールW-0913
(商品名: 同上)
(4) 化合物No. 56

[0041] 製剤例3

- 63 重量部
5 重量部

以上の各成分を混合して水和剤が得られる。

- (1) ハイフィラーNo. 10
(商品名: 松村産業(株)製)
(2) ソルボール5050
(商品名: 東邦化学工業(株)製)
(3) ソルボール5073
(商品名: 同上)
(4) 化合物No. 62

[0042] 製剤例4

- 33 重量部
3 重量部
4 重量部
60 重量部

以上の各成分を混合して水和剤が得られる。

- (1) 化合物No. 58
(2) トウモロコシ油
(3) ソルボール3815
(商品名: 東邦化学工業(株)製)
(4) 有機ベントナイト

[0043] 製剤例5

- 4 重量部
79 重量部
15 重量部
2 重量部

以上の(1)~(4)の成分を均一に混合し、ダイノミル(ウイリー・エ・パーホーベン(株)製)で粉砕し*

*て懸濁状組成物が得られる。

[0044] 製剤例6

- (1) 化合物No. 48
(2) ソルボール7290P
(商品名: 東邦化学工業(株)製)
(3) ビーガム
(商品名: バンダービルト社製)
(4) プロピレングリコール
(5) 水

- 40 重量部
4 重量部
1.5 重量部
10 重量部
44.5 重量部

以上の各成分を均一に混合し、湿式粉砕して水性懸濁剤が得られる。

[0045] 本発明除草剤は他の農薬、農業補助剤、薬害軽減剤などと混用又は併用することができ、この場合に一層優れた効果・作用性を示すことがある。他の除草剤と混用又は併用する場合、その混用相手除草剤の有効成分としては、例えば次のようなものが挙げられる。
(±)-2-[4-{(6-クロロ-2-キノキサリニル)オキシ}フェノキシ]プロピオン酸エチル(一般名: キザロホップエチル)・3-(1-メチルエチル)-1-H)-2, 1, 3-ベンゾチアジアジン-4-(3-H)-オン-2, 2-ジオキソール(一般名: ペンタゾン)・5-[2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ]-2-ニトロ安息香酸ナトリウム(一

般名: アシフルオルフェン)・2-[(4-クロロ-6-メトキシ-2-ピリミジニル)アミノ]カルボニルアミノスルホニル安息香酸エチル(一般名: クロリムロンエチル: Chlorimuron-ethyl)・(±)-5-[2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ]-2-ニトロ安息香酸2-エトキシ-1-メチル-2-オキシエチル(一般名: ラクトフェン)・4-(2, 4-ジクロロフェノキシ)酪酸(一般名: 2, 4-デイービー: 2, 4-DE)・2-クロロ-N-(2-エチル-6-メチルフェニル)-N-(2-メトキシ-1-メチルエチル)アセトアミド(一般名: メトラクロール)・(±)-2-[4-(6-クロロ-2-ベンゾキサゾリル)オキシ]フェノキシ]プロピオン酸エチル(一般名: フェノキサプロップエチ

15

16

ル)・(土)・2-[4-[(5-(トリフルオロメチル)-2-ピリジニル)オキシ]フェノキシ]プロピオン酸ブチル(一般名;フルアジホップ)・2-クロロ-N-(2,6-ジエチルフェニル)-N-(メトキシメチル)アセトアミド(一般名;アラクロール)・3-(3,4-ジクロロフェニル)-1-メトキシ-1-メチル尿素(一般名;リニユン)・4-アミノ-6-(1,1-ジメチルエチル)-3-(メチルチオ)-1,2,4-トリアジン-5-(4H)-オン(一般名;メトリブジン)・2-(1-(エトキシイミノ)ブチル)-5-[2-(エチルチオ)プロピル]-3-ヒドロキシ-2-シクロヘキセン-1-オン(一般名;セトキシジム)・(土)・2-[4,5-ジヒドロ-4-メチル-4-(1-メチルエチル)-5-オキソ-1H-イミダゾール-2-イル]-5-エチル-3-ピリジニルカルボン酸(一般名;イマザピタル)・5-[2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ]-N-(メチルスルホニル)-2-ニトロベンズアミド(一般名;ホメサフェン)・2-[4,5-ジヒドロ-4-メチル-4-(1-メチルエチル)-5-オキソ-1H-イミダゾール-2-イル]-3-キノリンカルボン酸(一般名;イマザキン)・2,6-ジニトロ-N,N-ジプロピル-4-(トリフルオロメチル)アニリン(一般名;トリフルラン)・3-(メトキシカルボニル)アミノフェニル(3-メチルフェニル)カーバメート(一般名;フェンメチファム)・エチル[3-[(フェニルアミノ)カルボニル]オキシ]フェニル]カーバメート(一般名;デスメチファム)・7-オキサビシクロ[2.2.1]ヘプタン-2,3-ジカルボン酸(一般名;エンドタル)・エチルジイソプロピルチオカーバメート(一般名;イーピーティシー;EPTC)・2-[4-[(3-クロロ-5-(トリフルオロメチル)-2-ピリジニル)オキシ]フェノキシ]プロピオン酸メチル(一般名;ハロキシホップ)・(土)・メタンスルホン酸2-エトキシ-2,3-ジヒドロ-3,3-ジメチル-5-ベンゾフラニル(一般名;エトフメセト)・5-アミノ-4-クロロ-2-フェニル-3-(2H)-ピリダジン(一般名;クロリダゾン)・2-[[(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)アミノ]カルボニル]アミノスルホニル]安息香酸メチル(一般名;メツルフロニ-メチル)・6-(4-イソプロピル-4-メチル-5-オキソ-2-イミダゾリン-2-イル)-4-ニトロ-1-イソプロピル-4-メチル-5-オキソ-2-イミダゾリン-2-イル)-P-トルイル酸メチル(一般名;イマザメタンズ)・1,2-ジメチル-3,5-ジフェニル-1H-ピラゾリンメチル硫酸塩(一般名;ジフェンゾート)・3,6-ジクロロ-2-メトキシ安息香酸(一般名;ジカンパ)・3,5-ジプロモ-4-ヒドロキシベ

ンゾニトリル(一般名;プロモキシニル)・4-ヒドロキシ-3,5-ジヨードベンゾニトリル(一般名;アイオキシニル)・2,4-ジクロロフェノキシ酢酸(一般名;2,4-デュー;2,4-D)N'-3,4-ジクロロフェニル-N,N-ジメチル尿素(一般名;ジウロン)・2-[[(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)メチルアミノ]カルボニル]アミノスルホニル]安息香酸メチル(一般名;トリベンウロン;tribenuron)・s-(2,3,3-トリクロロ-2-ブロベニル)-ビス-(1-メチルエチル)チオカーバメート(一般名;トリアレト)・2-クロロ-N-[[(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)アミノ]カルボニル]ベンゼンスルホンアミド(一般名;クロルスルフロニ)・3-[(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)アミノ]カルボニル]アミノスルホニル]-2-チオフェンカルボン酸メチル(一般名;チアメツロン-メチル;thiameturon-methyl)・(土)・2-(4-(2,4-ジクロロフェノキシ)フェノキシ)プロピオン酸メチル(一般名;ジクロホップ-メチル)・4-クロロ-2-メチルフェノキシ酢酸(一般名;エムシービーエー;MCPA)・4-アミノ-6-(1,1-ジメチルエチル)-3-(メチルチオ)-1,2,4-トリアジン-5-(4H)-オン(一般名;メトリブジン)・3,6-ジクロロ-2-ピリジニルカルボン酸(一般名;クロビラム)・4-アミノ-3,5,6-トリクロロ-2-ピリジニルカルボン酸(一般名;ビクロラム)・O-(6-クロロ-3-フェニル-4-ヒドリダジニル)-S-オクテルチオカーバメート

[0046]本発明除草剤の適用範囲は、畑地、果樹園、桑園などの農耕地、山林、農道、グラウンド、工場敷地などの非農耕地と多岐にわたり、又適用方法も土壌処理、葉面処理を適宜選択できる。

[0047]

【実施例】以下に本発明化合物の具体的合成例並びに生物試験例に記載するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0048]合成例1 4-トリフルオロメチル-N-(6-[(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)アミノカルボニル]アミノスルホニル]ピリジン-2-イル)-N-メチルベンズアミド(後記化合物No.48)の合成

[0049]1) 2,6-ジクロロピリジン250g、ジメチルスルホキシド500ml及び無水炭酸力ウム256gの混合液を110℃まで加熱した。この中へ約1時間でベンジルメルカプタン23.4gを滴下した。滴下終了後110℃でさらに約1時間反応させた。反応終了後、反応混合物を1000mlの水の中

17

投入し、塩化メチレンで抽出した。塩化メチレン層を10%水酸化ナトリウム水溶液で洗浄した後、水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。その後減圧下塩化メチレンを留去することによりオイル状の2-ベンジルチオ-6-クロロピリジン430gを得た。

【0050】2) 2-ベンジルチオ-6-クロロピリジン430g、酢酸500ml及び水900mlの混合液を氷冷し、0℃〜5℃で塩素ガスを導入した。過剰の塩素ガスが認められるまで導入し、反応させた。反応終了後、反応系内に窒素ガスをバブルし過剰の塩素ガスを追い出した。反応物を氷水中に投入し、塩化メチレン抽出を行ない、塩化メチレン層を氷水洗浄した後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。次いで塩化メチレン溶液を氷冷し、ターシャリーブチルアミン401gを約2時間で滴下し反応させた。反応終了後、水中へ投入し、分液した。塩化メチレン層を無水硫酸ナトリウムで乾燥し、塩化メチレンを留去した。残渣にエーテルとn-ヘキサン混合物を加え結晶化させ、生じた結晶を濾取、減圧乾燥して6-クロロ-N-ターシャリーブチル-2-ピリジンスルホンアミド280gを得た。

【0051】3) 6-クロロ-N-ターシャリーブチル-2-ピリジンスルホンアミド25g、20%メチルアミン水溶液150ml及び塩化第一銅0.5gを200mlニオートクレープに仕込み、150℃で約3時間反応させた。反応終了後、放冷し、内容物を水中に投入した。生じた結晶を濾取し、水洗し、乾燥して融点157〜160℃の目的物22.7gを得た。

【0052】4) N-ターシャリーブチル-6-メチルアミノ-2-ピリジンスルホンアミド1.0g及びトリエチルアミン0.42gを1、2-ジクロロエタン200mlに溶解させ、室温下で攪拌しているところへ4-トリフルオロメチルベンゾイルクロライド0.86gを加え、その後還流温度で20時間攪拌下に反応させた。反応終了後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して融点168〜170℃のN-〔6-(ターシャリーブチルアミノ)スルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-4-トリフルオロメチル-N-メチルベンズアミド1.3gを得た。

【0053】5) N-〔6-(ターシャリーブチルアミノ)スルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-4-トリフルオロメチル-N-メチルベンズアミド2.0gにトリフルオロ酢酸20mlを加え、室温で20時間攪拌下に反応させた。反応終了後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して融点160〜162℃のN-〔6-(アミノ)スルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-4-トリフルオロ-N-メチルベンズアミド1.33gを得た。

【0054】6) N-〔6-(アミノ)スルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-4-トリフルオロ-N-メチルベンズアミド1.0g及びフェニル (2、4-ジメトキ

18

シビリミジン-2-イル) カーバメート0.76gをアセトニトリル20mlに溶解させ、室温下で攪拌しているところへ1、8-ジアザビシクロ〔5.4.0〕-7-ウンデセン0.42gを加え、その後室温で20時間攪拌下に反応させた。反応終了後、反応液に水を加え、塩酸にて酸性として、酢酸エチル200mlにて抽出した。その後芒硝にて乾燥し、溶媒を減圧留去した。得られた残渣をエーテル-ヘキサン溶液を用いて結晶化させ、析出した結晶を濾取、減圧乾燥して融点139〜141℃の目的物1.0gを得た。

【0055】合成例2 6-プロモ-N-〔6-〔(4,6-ジメトキシシビリミジン-2-イル)アミノカルボニル〕アミノスルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-N-メチルピコリン酸アミド〔後記化合物No.58〕の合成

【0056】1) 2、6-ジプロモピリジン11g、N、N-ジメチルホルムアミド600ml及びシアン化銅4.37gの混合物を還流下約2時間反応させた。反応終了後、放冷し、28%アンモニア水200ml中に投入し、塩化メチレンで抽出した。塩化メチレン層を無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、塩化メチレンを留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して融点101〜104℃の2-プロモ-6-シアノピリジン1.6gを得た。

【0057】2) 2-プロモ-6-シアノピリジン1.4g、水酸化ナトリウム0.46g及び水150mlの混合物を還流下約1時間反応させた。反応終了後、放冷し、水中に投入した。塩化メチレン50mlで洗浄した後、水層を濃塩酸でpH2にすると結晶が析出した。生じた結晶を濾取し、減圧乾燥して6-プロモピコリン酸1.17gを得た。

【0058】3) 6-プロモピコリン酸1.16g及びオキシ塩化リン150mlの混合物を還流下約3時間反応させた。反応終了後、過剰のオキシ塩化リンを減圧留去し、残渣に1、2-ジクロロエタン25mlを加え、さらにN-ターシャリーブチル-6-メチルアミノピリジン-2-イルスルホンアミド1.3gを加えた。この中に室温でトリエチルアミン0.81gを約15分間わたって滴下した。滴下終了後室温で約1時間反応させた。反応終了後、反応液を水中に投入し、塩化メチレン抽出を行った。塩化メチレン層を無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、塩化メチレンを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して融点174〜178℃の6-プロモ-N-〔6-(ターシャリーブチルアミノ)スルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-N-メチルピコリンアミド2.01gを得た。

【0059】4) 6-プロモ-N-〔6-(ターシャリーブチルアミノ)スルホン(ニル)ピリジン-2-イル〕-N-メチルピコリン酸アミド1.6g及びトリフルオロ酢酸20mlの混合物を室温で3時間、続いて40℃で1時

間反応させた。反応終了後、過剰のトリフルオロ酢酸を溜去し、残余にエーテルを加えて結晶化させた。生じた結晶を濾取し、減圧乾燥して融点 $178\sim 182^{\circ}\text{C}$ のN-(6-アミノスルホニルピリジン-2-イル)-6-ブロモ-N-メチルピコリン酸アミド 1.24g を得た。

【0060】5) N-(6-アミノスルホニルピリジン-2-イル)-6-ブロモ-N-メチルピコリン酸アミド 0.25g 、フェニル(2,4-ジメトキシピリミジン-2-イル)カーバメイト 0.19g 及びアセトン 10 トリル 5ml の混合物に室温で $1,8$ -ジアザビシクロ*

*【5,4,0】-7-ウンデセン 0.1g を加えたのち室温で 10 分間反応させた。反応終了後、反応混合物を水中に投入し塩酸にて弱酸性にして析出した固体を濾取し、水洗し、乾燥して融点 $180\sim 185^{\circ}\text{C}$ の目的物 0.34g を得た。

【0061】前記合成例に準じて製造される一般式(I-1)で表わされる化合物の代表例を第1表に挙げる。

【0062】

【表1】

第1表

中間体 No.	R ¹	R ²	R ³	物 性 融点(°C)
1	シクロプロピル	H	H	218-220
2	シクロプロピル	CH ₃	H	118-115
3	シクロプロピル	CH ₃	Br	188-190
4	シクロブチル	H	H	224-228
5	シクロペンチル	H	H	200-202
6	シクロペンチル	CH ₃	H	120-121
7	シクロヘキシル	H	H	173-174
8	シクロヘキシル	CH ₃	H	130-132
9	CH ₃ OCH ₃	H	H	205-207
10	CH ₃ OCH ₃	CH ₃	H	143-146
11	CH ₃ OCH ₃	CH ₃	CF ₃	148-151

【0063】

【表2】

中間体 No	R ¹	R ²	R ³	物 性 融点 (°C)
12	CH ₂ OCH ₃	C ₂ H ₅	H	アノ伏
13	CH ₂ OC ₂ H ₅	H	H	155-159
14	CH ₂ OC ₂ H ₅	CH ₃	H	147-149
15	CH ₃ OC ₂ H ₅	C ₂ H ₅	H	69-74
16	CH ₂ CH ₂ OC ₂ H ₅	CH ₃	H	109-110
17	フェニル	CH ₃	H	136-139
18	2-ヒドロキシ カルギニルフェ ニル	CH ₃	H	143-145
19	2-ニトロ フェニル	H	H	200-202
20	2-ニトロ フェニル	CH ₃	H	190-192
21	4-ニトロ フェニル	H	H	163-165
22	4-ニトロ フェニル	CH ₃	H	161-163

{0064}

【表3】

中間体 No	R ¹	R ²	R ³	物 性 融点 (°C)
23	2-クロロ フェニル	H	H	164-155
24	2-クロロ フェニル	CH ₃	H	160-131
25	3-クロロ フェニル	H	H	270-273
26	3-クロロ フェニル	CH ₃	H	141-142
27	4-クロロ フェニル	CH ₃	H	150-153
28	2-CF ₃ フェニル	H	H	182-184
29	2-CF ₃ フェニル	CH ₃	H	180-182
30	3-CF ₃ フェニル	CH ₃	H	159-160
31	4-CF ₃ フェニル	H	H	268-270
32	4-CF ₃ フェニル	CH ₃	H	160-162
33	2-ピリジル	H	H	230-231

[0065]

【表4】

中間体 No.	R ¹	R ²	R ³	物 性 融点 (°C)
34	2-ピリジル	CH ₃	H	141-142
35	2-ピリジル	CH ₃	Br	280 (分解)
36	3-クロロ -2-ピリジル	CH ₃	H	155-168
37	6-クロロ -2-ピリジル	CH ₃	H	181-184
38	6-ブromo -2-ピリジル	CH ₃	H	174-182
39	3-CF ₃ -2-ピリジル	H	H	260-263
40	3-CF ₃ -2-ピリジル	CH ₃	H	
41	5-CF ₃ -2-ピリジル	CH ₃	H	149-152
42	3-ピリジル	CH ₃	H	153-158
43	2-クロロ -3-ピリジル	CH ₃	H	160-161
44	4-ピリジル	H	H	175 (分解)

[0066]

[表5]

中間体 No.	R ¹	R ²	R ³	物 性 融点 (°C)
45	4-ピリジル	CH ₃	H	153-155
46	2-ピラジニル	H	H	273-275
47	2-ピラジニル	CH ₃	H	195-197
48	2-チエニル	H	H	264-265
49	2-チエニル	CH ₃	H	130-131
50	3-チエニル	H	H	260-262
51	3-チエニル	CH ₃	H	139-140
52	2-フリル	H	H	272-273
53	2-フリル	CH ₃	H	164-165
54	8-クロロ-5 ピリ-2-ピリ ジル	CH ₃	H	197-198
55	6-CF ₃ -2-ピリジル	H	H	

【0067】

【表6】

中間体 No.	R ¹	R ²	R ³	物 性 融点 (°C)
56	4-シアノ フェニル	CH ₃	H	
57	6-フルオロ -2-ピリジル	CH ₃	H	
58	6-メチル -2-ピリジル	CH ₃	H	
59	1,3-ジメチ ル-5-ピラゾ リル	CH ₃	H	
60	5-CH ₃ SO ₂ - 2-ピリジル	CH ₃	H	
61	5-CP ₃ -2-ピリジル	C ₂ H ₅	H	140-142
62	5-ブロモ -2-ピリジル	CH ₃	H	190-193
63	5-ブロモ -2-ピリジル	C ₂ H ₅	H	183-184
64	6-メトキシ -2-ピリジル	CH ₃	H	
65	4-CP ₃ - 2- ニトロフェニル	CH ₃	H	

【0068】次に前記合成例に準じて製造される一般式

【0069】

(1) で表わされる化合物の代表例を第2表に挙げる。

30 【表7】

第2表

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点(°C)
1	シクロ プロピル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	189- 191
2	シクロ プロピル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	164- 166
3	シクロ プロピル	CH ₃	H	Cl	OCH ₃	=CH-	78- 75
4	シクロ プロピル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	70- 72
5	シクロ プロピル	CH ₃	Br	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	158- 160
6	シクロ ブチル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	173- 175
7	シクロ ペンチル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	160- 161
8	シクロ ペンチル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	154- 155
9	シクロ ヘキシル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	158- 159
10	シクロ ヘキシル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	125- 127
11	CH ₂ OCH ₃	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	178- 182

【0070】

【表8】

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点(°C)
12	CH ₂ OCH ₃	H	H	CH ₂	OCH ₃	=N-	158- 160
13	CH ₂ OCH ₃	CH ₃	H	OCH ₂	OCH ₃	=CH-	165- 168
14	CH ₂ OCH ₃	CH ₃	H	CH ₂	CH ₃	=CH-	182- 184
15	CH ₂ OCH ₃	CH ₃	H	CH ₂	OCH ₃	=N-	146- 150
16	CH ₂ OCH ₃	CH ₃	CF ₃	OCH ₂	OCH ₃	=CH-	157- 160
17	CH ₂ OCH ₃	CH ₃	CF ₃	CH ₂	CH ₃	=CH-	177- 181
18	CH ₂ OCH ₃	CH ₃	CF ₃	CH ₂	OCH ₃	=N-	151- 155
19	CH ₂ OCH ₃	C ₂ H ₅	H	OCH ₂	OCH ₃	=CH-	161- 164
20	CH ₂ OC ₂ H ₅	H	H	OCH ₂	OCH ₃	=CH-	168- 173
21	CH ₂ OC ₂ H ₅	H	H	CH ₂	OCH ₃	=N-	162- 165
22	CH ₂ OC ₂ H ₅	CH ₃	H	OCH ₂	OCH ₃	=CH-	154- 158

[0071]

【表9】

化合物No	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点(°C)
23	CH ₃ OC ₂ H ₅	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	120- 123.5
24	CH ₃ OC ₂ H ₅	C ₂ H ₅	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	124- 127
25	CH ₃ OC ₂ H ₅	C ₂ H ₅	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	109- 111
26	CH ₃ CH ₂ OC ₂ H ₅	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	147- 148
27	CH ₃ CH ₂ OC ₂ H ₅	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	124- 125
28	フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	158- 162
29	フェニル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	148- 152
30	2-ヒドロキシ シカルボニル フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	151- 152
31	2-ニトロ フェニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	183- 185
32	2-ニトロ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	163- 165
33	4-ニトロ フェニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	278- 280

【表10】

【0072】

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点 (°C)
34	4-ニトロ フェニル	CH ₃	H	OCH ₂	OCH ₃	=CH-	173- 175
35	2-クロロ フェニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	179- 180
36	2-クロロ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	91- 92
37	3-クロロ フェニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	272- 274
38	3-クロロ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	83- 85
39	3-クロロ フェニル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	95- 97
40	4-クロロ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	173- 176
41	4-クロロ フェニル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	180- 183
42	2-CF ₃ フェニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	185- 188
43	2-CF ₃ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	95- 98
44	2-CF ₃ フェニル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	100- 104

[0073]

【表11】

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点 (°C)
45	3- CF_3 フェニル	CH_3	H	OCH_3	OCH_3	=CH-	86- 90
46	3- CF_3 フェニル	CH_3	H	CH_3	OCH_3	=N-	92- 95
47	4- CF_3 フェニル	H	H	OCH_3	OCH_3	=CH-	263- 265
48	4- CF_3 フェニル	CH_3	H	OCH_3	OCH_3	=CH-	139- 141
49	2- ピリジル	H	H	OCH_3	OCH_3	=CH-	250- 251
50	2- ピリジル	CH_3	H	OCH_3	OCH_3	=CH-	162- 163
51	2- ピリジル	CH_3	H	Cl	OCH_3	=CH-	93- 95
52	2- ピリジル	CH_3	H	CH_3	OCH_3	=N-	
53	2- ピリジル	CH_3	Br	OCH_3	OCH_3	=CH-	150
54	3-クロロ 2-ピリジン	CH_3	H	OCH_3	OCH_3	=CH-	185- 189
55	3-クロロ 2-ピリジン	CH_3	H	CH_3	OCH_3	=N-	182- 186

{0074}

【表12】

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点(°C)
56	6-クロロ -2-ピリ ジル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	174- 178
57	6-クロロ -2-ピリ ジル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	154- 158
58	6-プロモ -2-ピリ ジル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	180- 185
59	6-プロモ -2-ピリ ジル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	151- 155
60	3-CF ₃ - 2-ピリジ ル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	255- 258
61	3-CF ₃ - 2-ピリジ ル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	165- 169
62	5-CF ₃ - 2-ピリジ ル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	163- 166
63	5-CF ₃ - 2-ピリジ ル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	154- 157
64	3- ピリジル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	162- 165
65	3- ピリジル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	138- 144
66	2-クロロ -3-ピリ ジル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	180- 182

[0075]

[表13]

化合物 No.	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物 性 融点 (°C)
67	4- ピリジル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	159- 164
68	4- ピリジル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	178- 184
68	4- ピリジル	CH ₃	H	CH ₃	OCH ₃	=N-	148- 155
70	2- ピラジニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	256- 258
71	2- ピラジニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	190- 192
72	2- チエニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	241- 242
73	2- チエニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	182- 183
74	3- チエニル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	240
75	3- チエニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	152- 154
76	2-フリル	H	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	234- 235
77	2-フリル	H	H	Cl	OCH ₃	=CH-	257- 259

{0076}

【表14】

化合物	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点 (°C)
78	2-フリル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	187- 188
79	2-フリル	CH ₃	H	Cl	OCH ₃	=CH-	180- 182
80	3-クロロ-5- ピリジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	171- 173
81	6-CF ₃ - 2-ピリジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
82	4-シアノ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
83	6-フルオ ロ-2-ピ リジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
84	6-メチル 2-ピリ ジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
85	1,3-ジメ チル-5- ピラゾリル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
86	5-CH ₃ SO ₂ - 2-ピリ ジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
87	5-CF ₃ - 2-ピリジ リ	C ₆ H ₅	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	153- 157
88	5-ブromo 2-ピリ ジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	175- 178

【0077】

【表15】

化合物	R ¹	R ²	R ³	X	Y	A	物性 融点 (°C)
89	5-ブromo 2-ピリ ジリ	C ₆ H ₅	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	158- 164
90	6-メトキ シ-2-ピ リジリ	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	
91	4-CF ₃ - 2-ニトロ フェニル	CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	=CH-	

【0078】試験例11/1, 500アールポットに畑作土壌をつめ、各種植物の種子を播種した。その後、植物が一定の葉令（イネ1, 3〜3, 7葉期、ダイズ初生葉〜1, 5葉期、トウモロコシ2, 0〜4, 3葉期、ワタ子葉〜1, 2葉期、コムギ2, 0〜2, 8葉期、オナモミ1, 7〜3, 5葉期、アサガオ0, 2〜2, 5葉期、アメリカキンギョカ0, 1〜2, 5葉期、アオビユ0, 1〜2, 5葉期、ヒエ1, 5〜4, 0葉期、メヒシ

バ1, 2〜2, 0葉期）に達したとき、本発明除草剤の水和剤を所定量となるように秤量し、アール当たり5リットルの水に希釈した。更にその水溶液に農薬展着剤を0, 2%となるように加えて、小型スプレーで茎葉処理した。処理後18〜35日目に各種植物の生育状態を肉眼で観察調査をおこない、10段階（1：無処理区と同様〜10：完全に抑制）で生育抑制程度を評価し、第3

【0079】

【表16】

第3表

化合物No.	有効成分量 (g/g)	イホ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカナシ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
1	5 1.25	4 3	2 1	9 9	7 6		10 10	9 8	2 2	5 5	8 8		36 32 日目
5	5 1.25	6 5	10 8	8 8		2 1	10 7	8 6	10 10		6 8	2 2	32 日目
8	5 1.25	7 7	7 6	10 9	7 7		10 10	7 7	4 3	10 8	10 8		29 26 日目
7	5 1.25	6 6	7 6	10 9	6 6		10 10	10 10	4 3	10 8	9 7		26 日目
8	5 1.25	6 5	6 5	10 10	7 8		10 10	10 9	4 3	9 8	7 6		26 日目
9	5 1.25	8 3	4 3	10 7	2 1		10 9	4 3	6 6	5 5	3 2		31 31 日目
11	5 1.25	10 10	10 10	10 10	3 9		10 9	8 9	7 3	10 10	10 10		18 18 日目
12	5 1.25	9 7	7 6	10 10	4 3		8 7	8 7	4 2	9 8	2 1		18 日目
13	5 1.25	10 10	10 10	10 10			10 10	10 9	9 8	10 10	10 10		21 21 日目
14	5 1.25	7 6	7 6	8 7	6 6	4 3	9 8	8 7	10 8	10 9	3 2		23 23 日目

【0080】

【表17】

化合物No	有効成分量 (g/g)	イネ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカカン ゴシロ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
15	5	9	9	9	8	5	10	3	9	10	7		24 日
	1.25	9	7	6	7	3	9	7	8	10	4		
16	5	9	10	9	10	9	10	9	9	10	9		21 日
	1.25	8	10	6	9	7	10	3	8	9	8		
	0.31	6	9	5	9	5	10	5	7	8	7		
17	5	6	10	9	10	6	10	10	9	9	8		日 月
	1.25	6	10	7	10	5	10	9	8	8	8		
	0.31	5	9	4	7	4	7	9	7	5	7		
18	5	3	6	6	7	6	9	7	7	8	4		22 日
	1.25	2	3	3	4	3	6	6	4	6	3		
19	5	9	9	10	9		10	10	9	10	9		22 日
	1.25	9	9	10	9		9	10	8	10	8		
20	5	10	10	10	10		10	9	5	10	10		13 日
	1.25	10	10	10	9		10	9	4	10	10		
21	5	10	8	10	4		9	8	3	6	5		18 日
	1.25	7	5	9	3		7	6	2	5	2		
22	5	10	9	10	8		10	9	9	9	10		21 日
	1.25	8	9	10	7		10	9	8	8	8		
23	5	10	9	10	7		10	10	8	10	10		20 日
	1.25	9	8	10	4		10	9	7	10	8		

{0081}

【表18】

51

52

化合物名	有効成分 (%)	イネ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカカン ゴジカ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
24	5	6	10	10	8		10	5	7	7	7		21 日
	1.25	4	10	10	7		10	4	5	5	5		
25	5	10	10	10	9		10	10	9	10	10		20 日
	1.25	9	9	10	8		10	10	8	9	8		
27	5	5	7	10	3		10	10	6	9	3		20 日
	1.25	2	4	9	2		9	6	5	7	2		
28	5	7	8	9	7		10	8	8	10	4		25 日
	1.25	6	7	6	5		8	6	6	6	3		
30	5	7	6	7		2	10	7	6	9	5	3	32 日
	1.25	3	3	2		1		5	4	9	2	3	
32	5	10	10	10		9	10	8	9	10	10	6	32 日
	1.25	8	10	10		4		8	7	8	9	3	
33	5	7	4	8		4	10	8	4		6	4	27
	1.25	5	3	5		2	6		3	9	5	2	H
34	5	5	2	2		2	8	8	7	9	3	1	H
35	5	5	3	4	4		10	10	4	8	1		26
	1.25	4	2	2	2		9	9	3	7	1		
36	5	8	4	10	4		10	9	8	9	1		11
	1.25	5	2	10	4		10	9	5	8	1		

【0082】

【表19】

化合物No.	有効成分量 (g/g)	イホ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカカネ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
37	5	5	1	2	4		7	4	2	5	3		
38	5	7	7	10	6		10	10	5	9	3		21
	1.25	3	6	10	5		9	9	4	3	2		口
	0.31	5	6	7	3		9	7	1	5	1		日
40	1.25	9	3	8		3	7	2	6	9	5	3	34
	0.31	3	7	7		1	6	1	4	9	4	2	日
45	1.25	4	6	10		1		3	5	10	7	3	27
47	5	10	6	8		1	8	6	3	9	2	3	32
48	5	10	10	10		2	10	7	7	8	10	3	日
49	5	7	4	10	3	3	8	9	6	9	5		27
	1.25	6	2	9	5	2	7	7	6	7	3		
	0.31	5	2	5	4	1	7	7	3	7	2		
50	5	10	10	10	9	10	10	9	8	10	10		目
	1.25	10	10	10	9	9	7	9	6	10	10		
	0.31	9	10	10	7	7	6	9	4	9	9		
51	1.25	8	7	9		2	8	10	5	10	9	5	34
	0.31	6	4	4		1	6	4	2	3	4	3	日
52	1.25	6	5	7		3	9	3	7	10	5	4	日
	0.31	4	2	2		2	6	1	4	9	2	2	

【0083】

【表20】

化合物No.	有効成分 (%)	イネ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカキン ゴブソカ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
53	5	6	7	5		2	10	7	6	10	2	2	32 日
54	1.25	8	6	9		4	8	8	5	9	5	3	31 日
	0.31	7	5	8		2	7	5	2	9	3	1	
56	5	10	9	10		9	10	9	8	9	10	7	27 日
	1.25	10	9	10		7		9		10	10	3	
57	5	9	9	10		8	10	9	8		9	4	日
	1.25	9	9	10		6	10	10	4	10	9	4	
58	1.25	10	9	10		2	9	9	6	10	9	3	34 日
	0.31	8	9	10		1	7	10	9	10	9	1	
59	1.25	5	7	10		3	6	8	3	10	3	1	日
62	1.25	10	10	10		3	10	10	8	10	10	9	27 日
	0.31	9	9	10		2	10	10	7	10	8	6	
63	1.25	9	8	10		8	9	8	6	10	9	5	日
	0.31	8	7	4		1	8	8	5	10	6	1	
64	5	6	7	8		3	9	9	8	10	6	4	25 日
	1.25	4	2	1		2	8	8	4	8	4	2	
65	5	8	2	2		1	9	5	3	9	2	1	32 日

【0084】

【表21】

57

58

化合物名	有効成分量 (g/8)	イネ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカカン ゴジカ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
67	1.25	8	3	7		2	8	7	4	9	3	3	27日
68	5 1.25	8 8	8 8	8 6		5 5	9 9	9 8	5 4	10 9	8 6	5 4	25日
69	5 1.25	4 2	6 2	6 2		3 1	8 7	7 3	4 2	9 7	6 2	3 3	27日
70	5	10	10	10		4	10	7	5	10	7	3	32日
71	5	10	10	10		6	10	10	7	10	10	7	
72	5 1.25	8 7	6 5	4 2	8 7	8 4	9 8	10 9	3 1	10 9	7 4		31日
73	5 1.25 0.31	8 8 7	8 9 6	10 10 9	7 6 5	5 3 3	10 10 10	10 10 9	5 5 4	10 10 10	6 4 3		31日
75	1.25	8	8	10		3	8	8	7	10	8	3	34日
76	5 1.25	6 5		7 5	7 6	3 2	8 6	9 8	6 5	10 10	5 4		25日
77	5 1.25	10 7	9 8	10 8		6 4	9 8	10 7	9 6	9 10	9 2	8 5	23日

【0085】

【表22】

化合物名	有効成分量 (g/8)	イネ	ダイズ	トウモロコシ	ワタ	コムギ	オナモミ	アサガオ	アメリカカン ゴジカ	アオビユ	ヒエ	メヒシバ	調査日
78	5 1.25	10 9	10 9	10 10	9 8	7 5	10 10	10 10	10 9	10 10	9 8		25日
79	5 1.25	10 10	10 10	10 10		10 6	10 9	10 9	9 6	10 10	10 10	10 8	23日

【0086】試験例21/10, 000アルポットに畑作土壌をつめ、コムギ及びワイルドオートの種子を各々別のポットに播種した。その後、コムギが1.8〜2.5葉期、ワイルドオートが1.1〜1.5葉期に達したとき、本発明除草剤の水和剤を所定量となるように秤量し、アル当たり5リットルの水に希釈した。更にその水溶液に農業展着剤を0.2%となるように加えて、小型スプレーで茎葉処理した。処理後20〜23日目に各種植物の育成状態を肉眼で観察調査をおこない、前記試験例1と同様の方法で生育抑制程度を評価し、第4表の結果を得た。

40 【0087】

【表23】

59
第4表

化合物No	有効成分量 (g/a)	コムギ	ワイルド オート	調査日
6	1.25	3	8	23日目
8	1.25	3	7	
22	0.31	4	9-10	20日目
32	0.31	5	9	23日目
48	1.25	1	10	
78	0.31	4	9	
79	0.31	4	10	

[0088] 試験例31/10, 000アールポットに
畑作土壌をつめ、テンサイ（シュガービート）の種子を

10

60
第5表

化合物No	有効成分量 (g/a)	テンサイ (シュガービート)	調査日
57	1.25	2	18日目
58	0.31	2	18日目

播種した。その後テンサイが2葉期に達したとき、本発
明除草剤の水和剤を所定量となるように秤量し、アール
当り5リットルの水に希釈した。更にその水溶液に農業
展着剤を0.2%となるように加えて、小型スプレーで
基葉処理した。処理後18日目に各種植物の生育状態を
肉眼で観察調査をおこない、前記試験例1と同様の方法
で生育抑制程度を評価し、第5表の結果を得た。

[0089]

[表24]

フロントページの続き

(51)Int. Cl.⁵
C07D 409/14識別記号 庁内整理番号
8829-4C

F I

技術表示箇所

(72)発明者 吉田 常象
滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
産業株式会社中央研究所内
(72)発明者 中村 裕治
滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
産業株式会社中央研究所内

(72)発明者 澤木 雅彦
滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
産業株式会社中央研究所内
(72)発明者 本澤 彰一
滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
産業株式会社中央研究所内